



TITLE:

CeB_6における異方的交換相互作用(II. CeB_6の特性,価数揺動状態の総合的研究,科研費研究会報告)

AUTHOR(S):

半澤, 克郎; 柳瀬, 章; 糟谷, 忠雄

CITATION:

半澤, 克郎 ...[et al]. CeB_6における異方的交換相互作用(II. CeB_6の特性,価数揺動状態の総合的研究,科研費研究会報告). 物性研究 1982, 37(5): 32-35

ISSUE DATE:

1982-02-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/90473>

RIGHT:

CeB₆ の物性は、Ce³⁺ イオンの 4f 電子間の異方的交換相互作用に依る磁性状態と、dense Kondo state の非磁性状態の競合のため、複雑なものとなっていると考えられる。我々は、とりあえず、後者を無視して、前者の交換相互作用の異方が、CeB₆ の物性のどの部分を支配しているかを探ることを目的に、モデル計算を行う。その結果、これまでの考察の範囲内では、磁気相図における II 相の強磁場領域で、 Γ_7 - Γ_8 間の mixing をもたらすモーメント間の交換相互作用に起因する反強磁性秩序状態が実現している可能性があることを指摘する。

CeB₆ の低温低磁場領域（相図の III 相）では、中性子回折の測定結果に依り、 $(\sqrt{2}, 2\sqrt{2}, 2)a$ もしくは $(4, 4, 2)a$ を磁気的単位格子とする反強磁性的秩序状態が実現していることが確認されている。しかし、単純な秩序ではなく、磁気的秩序と Kondo state とが共存していると考えられる。高温領域（I 相）は、磁気的には常磁性状態と考えられるが、強い非干渉的 Kondo 効果が、室温から 3K まで見いだされている。これが、低温にいくに従い、干渉的な Kondo state へ移行していくと考えられる。しかし、3K までは、その顕著な影響は見られない。

一方、中間の II 相は、零磁場では各サイトのモーメントは消失している様に見える。従って、零磁場の I-II の相転移は弱く磁気的転移ではない。NMR の測定結果に依ると、磁場をかけていくと、モーメントの強磁性成分が出てくるとともに、反強磁性成分が誘起され磁場の増大とともに大きくなっていく。それに伴い、I-II の相転移も通常の反強磁性相転移へ移行する様に見えるが、転移点が高温度側へシフトすること、および、short range order の効果が極めて小さいという点で、通常の 2 次の反強磁性相転移とは様相を異にする。この振舞は、異方的交換相互作用に依る反強磁性秩序状

態と、Kondo 効果に依る非磁性状態との競争が、零磁場で後者と、強磁場で前者を安定にした結果と解釈できる。強磁場での磁性的秩序状態が、 Γ_7 - Γ_8 間の mixing-type のモーメントの反強磁性的長距離秩序状態である可能性を、以下の議論で指摘する。

II 相の強磁場領域では、Kondo 効果を無視する描像が良いと考えられる。この領域では、単結晶について、3つの対称軸方向の外部磁場の下での磁化過程が、40 T まで測定されている。その振舞は、単純に結晶場の効果のみを考慮して予想される振舞とは大きく異なり、その原因と考えられる交換相互作用の異方性に多大な情報を与えてくれる。従って、この強磁場磁化過程を、異方的交換相互作用の立場から解析することから始める。

異方的交換相互作用を現象論的に取り込むため、次の様なモデルを考える。 Ce^{3+} イオンの 4f 電子のモーメントを、結晶場の固有状態を用いて、 Γ_7 -doublet、 Γ_8 -quartet および Γ_7 - Γ_8 の off-diagonal (これを以下、mixing-type のモーメントと呼ぶ。) の3種類定義する。これらを用いて、i-site の 4f 電子と、j-site の 4f 電子との間の交換相互作用を、次の様に書く。

$$-2 \sum_{I,J=D,Q,M} \sum_{\mu,\nu=x,y,z} \hat{J}_{i\mu}^I g_{ij\mu\nu}^{IJ} \hat{J}_{j\nu}^J$$

ここに、 $\hat{J}_{i\mu}^I$ は、i-site の I-モーメント (I = D の doublet のモーメント、以下同様) の μ 成分、 $g_{ij\mu\nu}^{IJ}$ は、有効交換積分である。

$g_{ij\mu\nu}^{IJ}$ の origin は、伝導電子である 5d 電子と 4f 電子間の Coulomb exchange および mixing、あるいは、Boron の 2p 電子との mixing を媒介とする間接交換相互作用と考えられる。

$g_{ij\mu\nu}^{IJ}$ を、モデル計算に依り評価するわけであるが、まず、以下の様な考察に依り、2つのモデルを考える。

1). IJ-依存性

5d 電子との相互作用という観点から、あるいは、常磁性領域での帯磁率の解析から、quartet に関わる相互作用が大きい、と考えられる。我々は、 $IJ = QQ$ 、および、帯磁率の解釈に重要である $IJ = MM$ を考慮し、ともに反強磁性的とする。この IJ -依存性を、第一種の異方性と呼ぶことにする。

2). μ_L -依存性

これを、第二種の異方性と呼ぶことにするが、今のところは無視し、等方的にとっておく。

3). ij -依存性

最初は、最隣接対についてのみとする。これを、モデルⅠと呼ぶ。次に、長距離間の相互作用を取り込む。これを、モデルⅡと呼ぶ。

相互作用として、上記の交換相互作用、および、結晶場と Zeeman 項を考える。モデルⅠで、2部分格子模型、分子場近似を用いて計算し、強磁場磁化過程を解析した結果については、前回の学会（'81年10月）で述べたが、結論の要旨は以下である。

mixing-type のモーメントの反強磁性秩序状態の磁化過程に依って、 $\langle 100 \rangle$ の磁化過程は良く説明できる。しかし、同時に、他の対称軸方向の磁化過程は説明できない。特に、実験では、 $\langle 110 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ の強磁場で磁化が大きく suppress されて、結晶場のみを考慮した時の磁気異方性が逆転しているが、このモデルでは説明できない。

そこで、モデルⅡを採用する。2部分格子模型、分子場近似はこのまま用いる。このことは、長距離間の相互作用が、十分に長距離、かつ、最隣接間よりも小さく、2部分格子以外の秩序状態が安定とならないことを仮定していることになる。

計算の上で変わるのは、モデルⅠでは、異なる部分格子に属するサイト間の相互作用のみであるのに対し、モデルⅡでは、自分自身の部分格子に属す

るサイト間の相互作用も生じるということである。異なる部分格子のサイトとの交換相互作用積分の総和を \tilde{J}_{AB}^{II} ($I = Q, M, A$ および B はそれぞれ部分格子の名称)、同じ部分格子のサイトとのそれを \tilde{J}_{AA}^{II} ($= \tilde{J}_{BB}^{II}$) とする。

$(\tilde{J}_{AB}^{II} - \tilde{J}_{AA}^{II})$ および $(\tilde{J}_{AB}^{II} + \tilde{J}_{AA}^{II})$ を、ともに負(反強磁性的)かつ、その大きさを後者を大きくとることにする。それに依って、 $T_N \ll |B_p|$ 、および、磁場に依って誘起されるモーメントの強磁性成分の大きさを suppression が得られる。

モデルⅠで、mixing-type のモーメントの反強磁性秩序相を、Ⅱ相に対応させた。これを、モデルⅡに拡張し、この秩序状態の磁化過程が、実験と同様の磁気異方性の逆転を生じるか、を検討した。その結果、mixing-type のモーメント間の長距離相互作用を、反強磁性的に取り込むことに依って、磁気異方性の逆転は説明できる。

また、それとともに、mixing-type のモーメントの反強磁性秩序状態は、常磁性状態に比べより安定となり、両者の相境界は、さらに強磁場まで伸びる。同時に、相境界の磁場の方向に依る異方性も小さくなる。

もうひとつ、注目すべき点として、磁場の増大に伴って、反強磁性成分が増加し、かつ、転移温度が高温側へシフトする振舞が、今のところ限られた条件下ではあるが、このモデルで得られることである。この振舞に強く関わっているのが、磁場の下で、canting spin の状態が安定か、parallel spin の状態が安定かであり、前者の場合、この特徴的振舞が生じ得る。上記のモデルの範囲では、 $\langle 111 \rangle$ -磁場の場合のみ parallel spin 状態が安定となる。

これらの点に着目して、さらに詳細な検討を加えている。